

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-279895

(43) 公開日 平成4年(1992)10月5日

| | | | | |
|---------------------------|---------|---------|-----|--------|
| (51) Int.Cl. ⁵ | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
| G 2 1 C 3/62 | G D L J | 7156-2G | | |
| 3/28 | G D L H | 7156-2G | | |

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平3-43065

(22) 出願日 平成3年(1991)3月8日

(71) 出願人 000230733

日本核燃料開発株式会社

茨城県東茨城郡大洗町成田町2163番地

(72) 発明者 宇根 勝己

茨城県東茨城郡大洗町成田町2163 日本核
燃料開発株式会社内

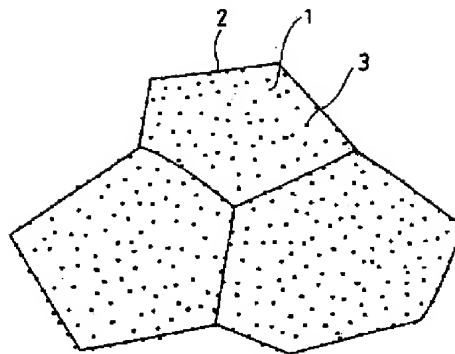
(74) 代理人 弁理士 猪股 祥晃

(54) 【発明の名称】 核燃料ペレット

(57) 【要約】

【目的】 核燃料物質の燃焼に伴い核分裂生成物であるヨウ素が発生して核燃料ペレットに蓄積され、さらにペレット外に放出されて燃料被覆管に応力腐食割れを生じさせる。また、ペレットに蓄積されたヨウ素は、使用済燃料の再処理工程において環境中に放出されるので、排気系にこれをトラップするための装置を設置しなければならない。本発明は、核燃料物質の燃焼に伴い発生するヨウ素をペレット内で固定して、燃料被覆管の応力腐食割れを防止すると共に、使用済燃料の再処理工程における放射性ヨウ素の環境中への放出を防止することを目的とする。

【構成】 本発明は、 UO_2 または UO_2 および Gd_2O_3 を含有する酸化物系核燃料ペレットにおいて、核分裂生成物のヨウ素と選択的に反応して安定な化合物を生成し得る物質をペレット内に一様に分散させることによって、ヨウ素をペレット内に固定化し、燃料被覆管の応力腐食割れや放射性ヨウ素の環境中への放出を防止する。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 UO_2 または UO_2 および Gd_2O_3 を含有する酸化物系核燃料ペレットにおいて、核分裂生成物のヨウ素と選択的に反応して安定な化合物を生成し得る物質がペレット内に一様に分散されていることを特徴とする核燃料ペレット。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、 UO_2 または UO_2 および Gd_2O_3 を含有する酸化物系核燃料ペレットに係わり、特に核燃料物質の燃焼に伴って生成するヨウ素をペレット内に固定する効果を有する上記核燃料ペレットに関する。

【0002】

【従来の技術】 軽水炉用核燃料要素は、酸化物系核燃料ペレットをジルコニウム合金製被覆管内に積層収容し、上端部にガス溜め用プレナム部と核燃料ペレットを安定に支持するためのプレナムスプリングを有し、両端開口部を上部端栓および下部端栓で密封溶接した構造となっている。核燃料ペレットがこのようなに密封された燃料被覆管内に収容されていることによって、核燃料ペレットの燃焼により生成した放射性核分裂生成物は被覆管内にとどまり、冷却材中に混入することがない。しかしながら、現在までの軽水炉の運転経験によれば、燃料燃焼度が高くなった段階で出力が急激に上昇すると、被覆管と腐食性核分裂生成物であるヨウ素との化学反応が起り、また核燃料ペレットが熱膨張することによって被覆管に引っ張り応力が加わり、両者の相乗作用によって燃料被覆管に応力腐食割れが生じる恐れがあることが判明した。

【0003】 このような燃料被覆管の応力腐食割れを防止することを目的として、ジルカロイ合金製燃料被覆管の内表面に例えば80～100 μm の純ジルコニウムライナ層を障壁として冶金的に結合したいわゆるジルコニウムライナ管が提案されており（特開昭55-164396号公報）、このジルコニウムライナ層によって被覆管と腐食性核分裂生成物との接触を防ぎ、被覆管の応力腐食割れを防止する効果が期待されている。

【0004】 また、核燃料ペレット内に蓄積した放射性ヨウ素は、使用済み燃料の再処理工程における硝酸溶液による溶解処理で、溶解液から雰囲気ガス中に移行する。そのため、再処理施設では、排気系に活性炭フィルターを設置して放射性ヨウ素をトラップしている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上記ジルコニウムライナ被覆管は内表面に活性な純ジルコニウム層が露出しているため、燃料要素内のガスと反応して応力腐食割れ防止機能が一時的に低下する可能性が生じた。また、ジルコニウムライナ被覆管は従来の被覆管に比べてその製造コストが高くなる。

【0006】 また、使用済み燃料の再処理工程における放射性ヨウ素の活性炭によるトラップ効率は必ずしも高くなく、少量の放射性ヨウ素が大気中に放出される可能性がある。その上、放射性ヨウ素をトラップした多量の活性炭は放射性廃棄物となり、しかも比較的容易に放射性ヨウ素が活性炭から再放出する恐れがあって、嚴重に管理する必要がある。

【0007】 本発明は上記状況に鑑みてなされたもので、核燃料物質の燃焼に伴って発生し蓄積するヨウ素をペレット内に固定することによって、燃料被覆管の応力腐食割れを防止し、さらに使用済み燃料の再処理工程における放射性ヨウ素の雰囲気中への放出を防止することを目的とするものである。

【0008】

【課題を解決するための手段】 すなわち本発明は、 UO_2 または UO_2 および Gd_2O_3 を含有する酸化物系核燃料ペレットにおいて、核分裂生成物のヨウ素と選択的に反応して安定な化合物を生成し得る物質をペレット内に一様に分散させることによって、上記目的を達成するものである。

【0009】

【作用】 まず、従来技術で作られた核燃料ペレット内での核分裂生成物の移行の形態を説明すると次のようになる。

【0010】 核燃料ペレット内には核分裂反応により多数の核分裂生成物が生成する。これら核分裂生成物のうち核燃料物質の母相に固溶するジルコニウム、希土類元素などは照射中比較的安定に母相内に保持され続ける。核分裂物質の母相に固溶しないヨウ素やセシウムといった固体状核分裂生成物、およびクリプトンやキセノンといった希ガス核分裂生成物は核燃料物質の母相内で生成された後、母相内を拡散して行き、結晶粒界に達して種々の形態で析出する。そして結晶粒界における析出量が多くなると粒界を通じて核燃料ペレット外に放出される。

【0011】 核燃料物質の母相に固溶しない固体状核分裂生成物のうち、ヨウ素は蒸気圧が高く腐食性が強いので、ジルコニウム合金製燃料被覆管内に応力腐食割れを起こす。また、核燃料ペレット外に放出されずにペレット内に留まったヨウ素は、使用済み燃料の再処理工程における溶解時に気体として雰囲気中に放出される。このヨウ素には 1.57×10^7 年の非常に長い半減期をもつ¹²⁹Iが含まれており、これらが再処理施設から環境中に放出されるのを防止する必要がある。

【0012】 一方、本発明の核燃料ペレットには、核燃料物質に固溶せずしかも核分裂生成物であるヨウ素と反応して安定な化合物を生成する物質が、微小粒子の形で結晶粒内および結晶粒界に一様に分散されている。したがって核燃料ペレット内に生成したヨウ素は、一様に分散した微小粒子と反応して安定な化合物となり、燃料の

出力が急激に上昇した場合でも、単体の形で核燃料ペレット外に放出されることがない。したがって、ジルコニウム合金製燃料被覆管の応力腐食割れが起こらず、核燃料要素の寿命を短縮する問題が解決できる。

【0013】また、本発明の核燃料ペレットを再処理施設で硝酸溶液中で溶解処理する場合には、核分裂生成物であるヨウ素は既にペレット内の上記微小粒子に固定されているので、ヨウ素は溶解雰囲気中に放出せず、したがって放射性ヨウ素の環境中への放出対策を講じる必要がない。

【0014】

【実施例】以下、本発明の一実施例を図面を参照して説明する。図2は本発明の一実施例である二酸化ウランからなる核燃料ペレットの製造方法を示す図である。核燃料物質の母相に固溶せずしかも核分裂生成物であるヨウ素と反応してこれをペレット内に固定する物質として、本実施例ではAg-Pd合金を用いた。

【0015】まず、ADU法により製造したUO₂粉末に、Ag20wt%-Pd80wt%合金微粉末（平均粒径0.5μm）を0.5重量%添加し、さらに約1重量%の潤滑剤を加えてボールミルで約2時間機械混合した。場合により潤滑剤は加えなくてもよい。その後、この混合粉末を圧粉成型してグリーンペレットを得た。次にこのグリーンペレットを脱脂工程に付した後、CO₂/N₂の酸化性混合ガス雰囲気中、1400℃で2時間焼結した。なお、脱脂工程は潤滑剤を使用しない場合は省略してもよい。その後、焼結ペレットの酸素対ウラン原子比（O/U比）を核燃料ペレットとして望ましい特性をもった2.00に調整する目的で、H₂/N₂の還元性混合ガス中で1400℃、1時間焼鈍して焼結ペレットを得た。上記方法により焼結した核燃料ペレットの密度を液浸法により測定したところ理論密度の96%であった。

【0016】なお、グリーンペレットの焼結条件は、上記した条件のほか従来から採用されているN₂に加湿H₂を加えた還元性雰囲気中で1600～1750℃の温度で焼結してもよいが、本実施例のように酸化性雰囲気中で焼結した方が本発明の核燃料ペレットをより容易に得ることができる。なぜなら、本実施例に用いたAg20wt%-Pd80wt%合金の融点は、図3に示すように約1450℃であるので、この温度以上で焼結するとUO₂に添加したAg-Pd合金の一部が焼結中にペレットから放出してしまう。したがって、高密度の核燃料ペレットを製造するためには、酸化性雰囲気中で焼結するのが好ましい。本実施例では、酸化性雰囲気をCO₂/N₂混合ガスによって得たが、CO₂/CO混合ガス、または空気/N₂混合ガスでも得ることができる。

【0017】上記実施例に示した方法によって製造した核燃料ペレットの組織を金属顕微鏡によって観察した結

果を模式的に図1に示す。この図に示されるように、ヨウ素固定化剤として添加したAg20wt%-Pd80wt%合金の微小粒子が二酸化ウラン母相および結晶粒界に均一に分散した組織を有している。図1において、1は二酸化ウランの母相、2は結晶粒界、3はAg20wt%-Pd80wt%合金の微小粒子である。このような核燃料ペレットを原子炉内で燃焼させると、核反応によって生成したヨウ素はAg20wt%-Pd80wt%合金の微小粒子と選択的に反応して金属ヨウ化物を生成し、ペレット内に固定化される。

【0018】なお、本実施例は核燃料物質としてUO₂を含有するペレットについて行ったが、UO₂にGd₂O₃を添加した混合酸化物核燃料ペレットでもよい。また、本実施例ではヨウ素固定化剤としてAg-Pd合金を用いたが、その他にもAg-Pt合金のうちのどれか一つか、これらの混合物でも同様の効果がえられる。上記Ag-PdおよびAg-Pt合金中のAgの含有量は90重量%以下の範囲で本発明の効果を失わない。さらに、本実施例ではAg-Pd合金の添加量を0.5重量%としたが、核燃料ペレット内に蓄積するヨウ素量を考慮して、0.05～1重量%までの範囲でもよい、上記ヨウ素固定化剤を核燃料ペレットに添加することによる原子炉の中性子経済に及ぼす影響は、その添加量が微量であるのでほとんどない。

【0019】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の核燃料ペレットは、腐食性核分裂生成物であるヨウ素と選択的に反応して安定な化合物を生成する微小粒子を核燃料ペレット内に一様に分散させたので、核燃料物質の燃焼によって発生するヨウ素はペレット内に固定され、ペレット外へ放出されることがない。その結果燃料被覆管の応力腐食割れを防止して燃料要素の寿命を大幅に伸長させることができる。さらに、本発明のペレットは、使用済燃料の再処理工程において硝酸溶解する際に、放射性ヨウ素を環境中にほとんど放出しないので、ヨウ素トラップ装置を設ける必要がなく、そのため放射性廃棄物の低減化および再処理コストの低減化を達成することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例である核燃料ペレットの金相組織を模式的に示した図。

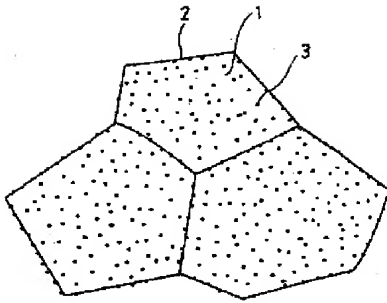
【図2】本発明の一実施例である核燃料ペレットの製造工程図。

【図3】ヨウ素固定化剤として添加されるAg-Pd合金の状態図。

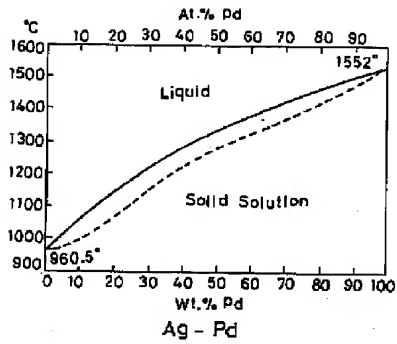
【符号の説明】

1…二酸化ウラン母相、2…結晶粒界、3…Ag-Pd合金の微小粒子。

【図1】



【図3】



【図2】

